

オープンバイアル法による土壌空気中ラドン濃度連続測定

堀内 公子*、秋葉 文仁**、田中 富士雄***

要 約

ラドンが有機溶媒によく溶けることを利用して水中のラドン定量法：トルエン抽出－液体シンチレーションカウンター測定法が開発された。次にその応用として空気中のラドン濃度測定法を検討し、Passive型のオープンバイアル法¹⁻²⁾を考案した。測定バイアルのキャップをはずし空気中に露出した液体シンチレーターの中に溶け込んでくるラドン濃度を測定する方法である。オープンバイアル法をウラン探査地域、地熱地域等に適用し、ウラン探査、温泉探査、断層探査等に利用出来ることがわかった³⁾。

今回は自然放射線地域への適用を検討した。

都内に掘った調査孔の中にオープンバイアルを5日間づつセットし、土壌空気中のラドン濃度を測定した。測定は21ヶ月間継続し、得られたデータを処理して高速フーリエ変換⁴⁾し、同一期間測定した気圧、気温、降雨量との相互相関関数を求めた⁵⁾。

1. はじめに

ラドン (^{222}Rn) はウラン (^{235}U) の崩壊生成物で、半減期 ($T_{1/2}$) 3.825日の放射性希ガスである。直接の親核種ラジウム (^{226}Ra) と共に主として地殻の中に存在する。ラジウムの α 崩壊に伴い岩石層の結晶構造等から飛び出し、土壌中の亀裂や空間にガスとして放出される。通常ラドンは土壌粒子空間の拡散または地下水の流れによって移動し、断層や空隙を通過して上昇し、土壌表面や、地下水、湧水と共に大気中に放出される。

トルエンがラドンに対して大きな溶解度を持つことを利用し、液体シンチレーター (LS: トルエンベース) を入れた測定用ガラスバイアルを一定時間空間に露出し、LSに溶け込んだラドンを測定するオープンバイアル (OV) 法を提案した。

本報は、動力をまったく用いない (Passive型) OV法により、土壌空気中のラドン濃度を計測した結果、得られた知見を報告する。

2. 調査孔

径10cm、深さ約35cmの孔をハンドオーガーで地表に掘り、孔口は紙製皿 (径20cm) で蓋をし、その上からポリエチレンシート (50cm)² で覆い、周囲を土で軽く押さえてその中にOVをセットし一定時間土壌空気中に露出せしめた。

地表に孔を掘ると孔壁から土壌空気中のラドンが土壌粒子空間を通過して拡散して来る。孔内のラドン濃度が安定するまで約1週間放置し調査孔とした。調査孔へラドンは土壌粒子によってろ過され、キャリアーフリー (娘核種を含まない) の状

*大妻女子大学社会情報学部、**岩手大学 RI 総合実験室、***神奈川県産業技術センター

態で出てくると考えられる。LS へのラドン溶解のメカニズムは拡散か分配か明確ではない。またラドンの平均寿命が5.50日であることからラドンを捕捉する OV のセット期間（露出時間）は原則として5日間とした。

3. OV 法

OV 法とは LS を入れた LSC の測定用バイアルのキャップをはずし、ラドンを測定する雰囲気中に露出し、溶解したラドンを積分計数法⁶⁻⁷⁾を用いて LSC により測定する方法である。

土壤空気中のラドンを測定する場合は、LS (PPO: 4 g, POPOP: 0.1g/ℓ トルエン) 20ml を測定バイアルにいれ、キャップをせずに地表に掘った調査孔中に吊り下げる。バイアルのホルダーとして写真のフィルムケースを利用し、調査孔の孔壁の崩壊により土砂粒が入らぬよう傘状に折ったろ紙をバイアルの上部に取り付けた(図1)。一定時間放置した後回収し、直ちにキャップをして LS の液量を計測し、蒸発により減少した LS は容量が20mlになるまで補充し、測定の際のジオ

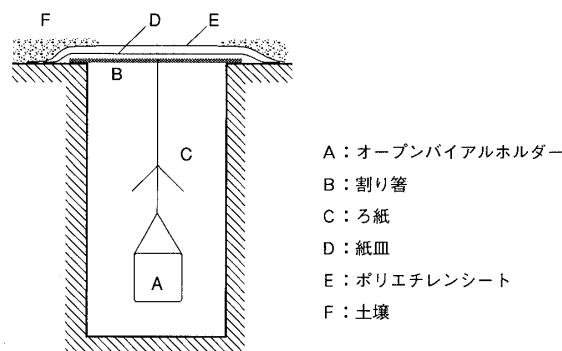


図1 オープンバイアルセット状況

表1 OV 法による土壤中ラドン濃度測定結果

露出期間 day	捕捉放射能 cpm	一日当たりのラドン量 cpm/day
5.0	23.3±1.1	4.7±0.22
5.0	55.8±1.2	11.2±0.24
4.8	70.8±1.3	14.2±0.26
5.3	56.7±1.2	11.3±0.24
4.9	57.8±1.2	11.6±0.24
5.0	72.6±1.3	14.5±0.26

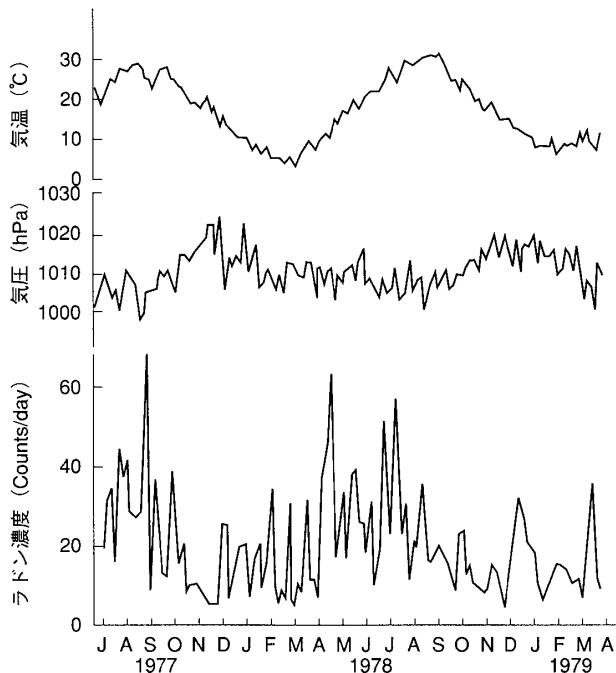
メトリーを一定にした。ラドンとその娘核種の間に放射平衡が成立するまで放置した後（3時間10分以降）、LSC により計測した。土壤空気中のラドンは5日間捕集し、ラドン計測値は露出日数で割り cpm/day 単位で表示した。測定結果の一部を表1に示した。

4. 実験及び計算

都内に掘った2箇所の調査孔で1977年6月10日より1979年3月11日まで21ヶ月間にわたり測定を継続した。同時に気圧、気温、降雨量（気象庁データ）も求めた。時には回収の遅れた場合や、雨などのため、早く回収した場合もあったが、バイアルから蒸発するトルエン量は補充して測定し、cpm/day として評価した。

得られたデータは次のような処理をしたのち高速フーリエ変換をおこない、ラドン濃度（cpm/day）と気圧、気温、降雨量との相互相関関数を求めた。

- ① 1回の測定（1データ）期間を5日間としたが、実験の都合により、これより長い場合も短い場合もあった。そうした場合には例えば6日間の測定値をA、次の4日間の測定値をBとし、初めの値をA、次の値を $(A + 4B)/5$ とし、すなわち測定値は測定期間中いつでも同一値を示すという仮定でデータを調整した。
- ② 2の乗数倍のデータが必要なため $2^7 = 128$ 点（約21ヶ月）を用いた。
- ③ 気圧、気温は露出5日間の日平均値の平均をその期間の代表値とした。またラドン濃度、気圧、気温、降雨量などは単位が異なるため、計算の必要上、この期間内に得られたデータの最高値と最小値を選び、この間を100等分して同一フルスケールにデータを揃えて処理した。以上の条件で得られた値をプロットしたものが図2で、ラドン濃度（cpm/day）、気圧（hPa）、気温（℃）の変化を示している。コンピューターを用いてこれらの値の高速フーリエ変換を行った。

図2 測定期間の温度、気圧、 ^{222}Rn 濃度の変化

5. 結果及び考察

5. 1 ラドン濃度と気圧との関係

高速フーリエ変換により得られたラドン濃度と気圧との関係を図3 (1) に示した。横軸に時間(日)、縦軸に相互相関関数を示している。時間0の時相互相関関数が約-0.4であることから、両者の間には逆相関があることがわかった。また全期間を通じて細かな気圧変動があるが、全体を通してみると約360日の大きな周期に従っている。小さな変動はランダムに現れているが10日～15日周期の季節変動に、相互相関を持っていることが伺える。

5. 2 ラドン濃度と気温との関係

同じように高速フーリエ変換により得られたラドン濃度と気温との関係を図3 (2) に示した。ラドン濃度と気温との関係は、(1) の波形をちょうど半周期ずらしたような波形を示した。時間0で、相互相関関数が約+0.35を示していることから、両者の間には正の相関が成り立っていることがわかった。また気温の場合も気圧の場合と同じように、約360日の周期を持ち、一年間の変動をよく表わしている。しかし(1)と異なる点

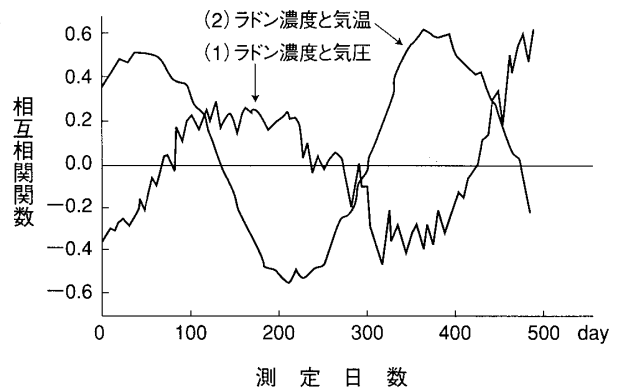


図3 相互相関図

(1) ラドン濃度と気圧、(2) ラドン濃度と気温

は、細かい変動があまり見られないことと、(1) より約50日の遅れがみられることである。言い換えれば気温が上がる約50日前にラドン濃度がピークに達することになる。この現象は興味ある事実である。

次に気圧と気温の相互相関を取ってみると50日～60日遅れの逆相関を示した。このことから気圧の変動に約2ヶ月遅れて気温の変動が起こる。それゆえ通常地中のラドン濃度が気圧変動に大きく影響されることを考慮すれば、上記の現象は当然の結果と言えよう。また同時に気温の変動の影響は気圧の変動に比べて少ないこともわかった。

5. 3 ラドン濃度と降雨量との関係

次に、高速フーリエ変換によりラドン濃度と降雨量との関係をみた。すなわち、測定期間中にあった5 mm以上の降雨量とラドン濃度との相関を調べたが、はっきりした相関はみられなかった。よってラドン濃度の変動と降雨量の間には殆ど関連性がないと言える。しかし東京における降雨量を10月～3月と4月～9月に2区分してみると夏季の方が、冬季よりややよい相関を示す傾向は見られている。しかし、回帰直線を求めるほどの傾向を示していないため、統計処理はおこなわなかった。

さらに降雨の影響等を調べるには土壌の性質や含水率なども検討していく必要があると考察した。水中や空気中のラドン濃度の変動は地殻の歪みに起因するといわれている⁸⁾。平常時の基礎的

なデータの積み重ねが地震等による地殻の急激な変化を解析するときの一助となろう。

参考文献

- 1) Horiuchi K and Murakami, Y., (1983) ; Determination of radon in soil gas by opened counting vial and liquid scintillation counter, Chemistry Letters, p159-162
- 2) Horiuchi K and Murakami, Y., (1983) ; A new method for the determination of radon in soil air by the "open vial" and integral counting with a liquid scintillation counter, J. Radioanal. chem. 80, No.1/2 p. 153-163
- 3) 堀内公子、石井 忠、飯島南海夫、(1996) ; オープンバイアル法と α -トラック法による土壌空気中のラドン濃度の測定 ; 社会情報学研究 5 p119-128
- 4) 理化学事典、第5版 (2002) p462
- 5) 堀内公子、秋葉文仁、石井忠、田中富士雄、牧康行、村上悠紀雄 (1982) ; オープンバイアル法による地表面よりのラドン放出量とその季節的変動について、第26回放射化学討論会講演要旨 1 S205, p96-97
- 6) Homma, Y. and Murakami, Y., (1977) ; Study on the applicability of the integral counting method for the determination of ^{226}Ra in various sample forms using a liquid scintillation counter, J. Radioanal. chem. 36, p173-184
- 7) 本間義夫、村上悠紀雄、(1977) ; 液体シンチレーションカウンターにおける積分計数法の応用 ; 分析機器 15 p227-231
- 8) 五十嵐丈二、佐伯雄司、高畑直人、佐野有司、済川要、田坂茂樹、佐々木嘉三、高橋誠 (1995) ; 兵庫県南部地震前の地下水中ラドン濃度異常、大気中のラドン族と環境放射能 III p201-203

Continuous determination of Radon in soil air by an opened counting vial and liquid scintillation counter

KIMIKO HORIUCHI*, HUMIHITO AKIHA**, HUIJO TANAKA***

**School of Social Information Studies, Otsuma Women's University*

***Radioisotope General Laboratory, Iwate University*

****Kanagawa Industrial Technology Center*

Abstract

We have previously developed a method for the determination of radon in natural water using toluene extraction and applying an integral counting method using a liquid scintillation counter studies. During these studies it was found that when an open vial containing toluene is exposed to the atmosphere, dissolution of radon clearly occurs. This is due largely to the partition coefficient of radon between some organic solvents such as toluene, and air or water.

To extend this finding for the determination of radon in the atmosphere, open vials containing a liquid scintillation solution, suspended in a hole of the ground surface, absorb a fixed proportion of radon present in soil gas. This vial method is acceptable for determination of radon in soil gas due to its rapidly, simplicity, and sensitivity. These factors are especially advantageous in field applications. This method promises to have many interesting applications in uranium prospecting, detection of fissures or faults, earthquake forecasting and others in geochemical experiments.

This time we have adopted OV method to the natural radioactivity region.

Open vial was set by every five-day circle in the test hole up which was dug in Tokyo, and the amount of radon in the soil air was measured. Fast Fourier transform was done and continued for 21 months the measurement, doing, and processing acquired data, and the cross correlation function with each amount of the rainfall was requested the atmospheric pressure and the nature temperature in which the same period was measured.

Key Words (キーワード)

^{222}Rn (ラドン)、open vial method (オープンバイアル法)、continuous determination (連続測定)、soil air (土壌空気)、fast Fourier transform (高速フーリエ変換)、test hole (調査孔)、cross correlation function (相互相関関数)、natural radioactivity (自然放射能)